

EUROPEAN PATENT OFFICE

Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 10275680
PUBLICATION DATE : 13-10-98

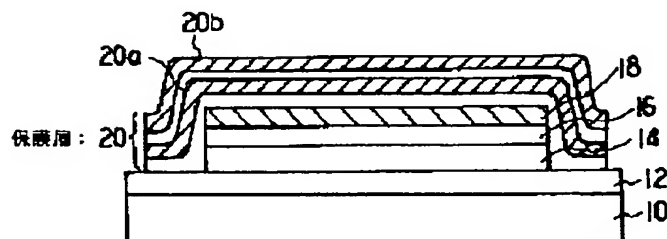
APPLICATION DATE : 31-03-97
APPLICATION NUMBER : 09079597

APPLICANT : TOYOTA CENTRAL RES & DEV LAB
INC;

INVENTOR : TAGA YASUNORI;

INT.CL. : H05B 33/04

TITLE : ORGANIC EL ELEMENT



ABSTRACT : PROBLEM TO BE SOLVED: To prevent the diffusion of moisture into an element and improve heat radiation.

SOLUTION: A transparent electrode 12, a positive hole transport layer 14, a luminescence layer 16 and a metal cathode 18 are formed on a glass substrate 10. The positive hole transport layer 14, the luminescence layer 16 and the metal cathode 18 are covered to form a protecting layer 20. The protecting layer 20 is formed in a multilayer structure with an insulating layer 20a and a metal layer 20b. In special, the metal layer 20 is provided in the protecting layer, so that the entry of moisture into an element is prevented and heat radiation is improved.

COPYRIGHT: (C)1998,JPO

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Disclaimer:

This English translation is produced by machine translation and may contain errors. The JPO, the NCIP, and those who drafted this document in the original language are not responsible for the result of the translation.

Notes:

1. Untranslatable words are replaced with asterisks (****).
2. Texts in the figures are not translated and shown as it is.

Translated: 22:34:22 JST 05/24/2005

Dictionary: Last updated 10/12/2004 / Priority:

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] In the organic EL device which makes a luminous layer emit light by ****(ing) the luminous layer which becomes inter-electrode [a pair of] from an organic material, and pouring a carrier into a luminous layer from two electrodes The organic EL device characterized by having the protection layer which consists of multilayer structure which contains two-layer [of an organic layer and a metal layer], or two-layer [of an inorganic layer and a metal layer] as protection **** which covers at least one electrode and the outside of a luminous layer.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]**[0001]**

[Field of the Invention] This invention **** the luminous layer which becomes inter-electrode [a pair of] from an organic material, and relates to the structure of the organic EL device which makes a luminous layer emit light especially its protection layer by pouring a carrier into a luminous layer from two electrodes.

[0002]

[Description of the Prior Art] The planar display using an organic EL device is capturing the big spotlight as a next-generation display, and the research and development about this are done briskly. If an organic EL device is used especially, the high quality display which has the features, such as a direct-current low voltage drive, a high angle of visibility, and spontaneous light, can be realized, and it is thought that the utility value is very high.

[0003] This organic EL device has the composition which carried out laminating formation of a transparent electrode (anode plate) / electron hole transporting bed / luminous layer / the metal electrode (cathode), for example on the glass substrate. Moreover, the big matter of a work function is used for an anode plate, and the small matter of a work function is used for cathode. And an organic material is used for an electron hole transporting bed and a luminous layer, and light is emitted when an electron recombines with the electron hole poured in from two electrodes in a luminous layer.

[0004] Here, the solid-state organic material used for an electron hole transporting bed or a luminous layer tends to be invaded by moisture, oxygen, etc., and if an organic EL device is driven in the atmosphere, the luminescence property will deteriorate rapidly. Furthermore, it is necessary to make it the electrode prepared on a solid-state organic material not oxidize. Therefore, it is necessary to prepare organicity and an inorganic protection layer, to close an element, and to isolate from the atmosphere in an organic EL device. For example, JP,H7-192867,A has the disclosure about various kinds of closure methods.

[0005]

[Problem to be solved by the invention] Thus, although the life of the organic EL device could be prolonged by preparing a protection layer, when sufficient antioxidizing and trespass prevention of moisture were aimed at, there was a problem that heat dissipation nature will worsen. That is, when thickness of the protection layer was made not much thick, the heat generated in the element stops having radiated heat enough, and there was a problem that the property of an element will deteriorate.

[0006] Especially the brightness that is required of EL element in the usual case is about two 200 cd/m, the actuation current for it is several two or less mA/cm, and the effect of generation of heat is not so great. However, with an organic EL device, the brightness which exceeds 1000 cd/m² by impression of 10V is obtained, and there is also a report that brightness is further improved by doping to a luminous layer and the brightness of 100,000 cd/m² is obtained by the latest research. For example, considering using an organic EL device as a source of flat light, several 1000 cd/m² needs to emit light, and current required for it becomes two or more 100 mA/cm. In this case, a chip temperature will exceed 100-degreeC, lowering and the nonluminescent point of brightness will occur, and degradation of an element will take place. Therefore, in such a high-intensity organic EL

THIS PAGE BLANK (USPTO)

device, calorific value is large and this cure is important. In addition, acceleration according [degradation of the element by heat] to the heat of a structural change of organic layers, such as a luminous layer, or electrode oxidation is the cause.

[0007] This invention aims at offering an organic EL device with a sufficient radiation characteristic while it is made for solving the above-mentioned technical problem and it can perform sufficient closure.

[0008]

[Means for solving problem] In the organic EL device which makes a luminous layer emit light by this invention's ****(ing) the luminous layer which becomes inter-electrode [a pair of] from an organic material, and pouring a carrier into a luminous layer from two electrodes It is the protection layer which covers at least one electrode and the outside of a luminous layer, and is characterized by having the protection layer which consists of multilayer structure containing two-layer [of an organic layer and a metal layer], or two-layer [of an inorganic layer and a metal layer].

[0009] Thus, in this invention, the electrode and the luminous layer were covered in the protection layer. By this, diffusion of the moisture to one electrode (for example, metal cathode) and the circumferential atmosphere of a luminous layer or oxygen can be prevented, the characteristic degradation of an element can be controlled, and reinforcement can be attained. The protection layer contains the metal layer in particular. The metal layer has very precise structure and prevents diffusion of oxygen or moisture effectively. Furthermore, it can prevent effectively also about diffusion of oxygen by using what forms the oxide film of passive states, such as aluminum, as a metal layer.

[0010] Moreover, since the metal layer has good thermal conductivity, it can radiate effectively the heat generated in the element, and can prevent heating of an element. When the amount of current is enlarged and light quantity is enlarged especially, the calorific value of an element is large and excelling in the heat dissipation nature becomes important requirements. According to this invention, also in the element of such large light quantity, degradation of a property is made to the minimum.

[0011] Moreover, if an insulating layer is arranged on an electrode, a metal layer and cathode can be insulated electrically. Furthermore, a radiating effect can be made into a sufficiently big thing by arranging a metal layer to an outermost side.

[0012]

[Mode for carrying out the invention] The form (henceforth an operation form) of operation of this invention is hereafter explained based on Drawings.

[0013] Drawing 1 is drawing showing the composition of the organic EL device concerning this operation form. The transparent electrode 12 is formed in the upper surface of the glass substrate 10. As for this transparent electrode 12, ITO (indium tin oxide), SnO₂, etc. are used. Laminating formation of the electron hole transporting bed 14 and luminous layer 16 which consist of an organic material on this transparent electrode 12 is carried out. The electron hole transporting bed 14 is formed of TPD (triphenyl diamine), and a luminous layer 16 is formed of Alq (quinolinol aluminum complex) etc. The metal cathode 18 is formed on a luminous layer 16. MgAg (9:1), AlLi (9.9:0.1), Maln (9:1), etc. are adopted as this metal cathode 18.

[0014] And the protection layer 20 is formed so that the whole including the side of this electron hole transporting bed 14, a luminous layer 16, and the metal cathode 18 may be covered. This protection layer 20 is a multilayer layer of an insulating layer 20a and the metal layer 20b, and these are laminated alternately with two-layer [every]. Here, the same organic substance as what was used for the electron hole transporting bed 14 or the luminous layer 16, and the organic substance of the various kinds of low-molecular and Polymer Division in addition to this can be used for an insulating layer 20a. Furthermore, it is also suitable to replace with an organic layer and to adopt an inorganic layer as this insulating layer 20a. For example, the inorganic layer of metal oxides, such as MgF₂, or a semiconductor compound can be used. moreover -- the metal layer 20b -- **** for aluminum -- although things are made, various kinds of metals, such as Cr, can also be used.

[0015] In such an organic EL device, by impressing voltage to the transparent electrode 12 and the metal cathode 18, an electron hole and an electron are poured in, and this recombines and emits light in a luminous layer 16 from two electrodes 12 and 18. With this operation form, since the element section which consists of the electron hole transporting bed 14, a luminous layer 16, and metal cathode 18 is covered with the protection layer 20, diffusion inside oxygen from the atmosphere and moisture is prevented effectively, and the adverse effect to an element characteristic can be eliminated by it.

[0016] In the element of this operation form, the protection layer 20 contains the metal layer 20b in particular. The metal layer 20b has very precise structure, and prevents diffusion of oxygen or moisture effectively. It can prevent effectively also about diffusion of oxygen by using what forms the oxide film of passive states, such as aluminum, as a metal layer 20b especially.

[0017] Moreover, since the metal layer 20 has good thermal conductivity, it can radiate effectively the heat

THIS PAGE BLANK (USPTO)

generated in the element section, and can prevent heating of the element section. When the amount of current is enlarged with 100 mA/cm^2 – about two 1 A/cm and light quantity is especially enlarged with $1000 - 10000 \text{ cd/m}^2$, the calorific value of the element section is large and the heat dissipation becomes an important technical problem. According to the element of this operation form, also in the element of such large light quantity, degradation of a property is made to the minimum.

[0018] Moreover, with this operation form, since the insulating layer 20a has been arranged on the metal cathode 18, the metal layer 20b and the metal cathode 18 can be electrically insulated by this. Furthermore, since the metal layer 20b has been arranged to the outermost side, a radiating effect is made to a sufficiently big thing.

[0019] In addition, about 50 nm and the metal cathode 18 are the insulating layers 20a of about 200 nm and the protection layer 20, and the metal layer 20b has [the electron hole transporting bed 14 and a luminous layer 16] desirable thickness of about 200 nm . Heat dissipation is possible for a very effective thing by making metal cathode 18 especially comparatively as thick as 200 nm or more.

[0020] Moreover, although laminating formation of the electron hole transporting bed 14 and the luminous layer 16 was carried out with the above-mentioned operation form, it is good also as 1 lamination of a mixed organicity layer. Furthermore, it is good also as composition which prepares not the electron hole transporting bed 14 but an electronic transporting bed in the metal cathode 18 side. Furthermore, it is also possible to use the transparent electrode 12 as cathode and to use a counterelectrode as an anode plate. Thus, various kinds of composition known now is employable as the composition of the element section.

[0021]

[Working example]

On the "example 1" glass substrate 10 currently formed beforehand, with vacuum deposition, 50 nm of triphenyl diamines were deposited, and the transparent electrode 12 of ITO formed the electron hole transporting bed 14, deposited 50 nm of quinolinol aluminum complexes after that, and formed the luminous layer 16. And on this luminous layer 16, 200 nm vacuum evaporation formation of the MgAg was carried out, the metal cathode 18 was formed, and the element was formed. Then, on this element section, MgF_2 and aluminum were laminated by turns and the protection layer 20 which consists of an insulating layer 20a and a metal layer 20b was formed. In this example, both thickness of the insulating layer 20a and the metal layer 20b was 200 nm , and formed three layers of these at a time.

[0022] Continuation actuation of this element was carried out by actuation current 10 mA/cm^2 , and the reduction-by-half life of brightness was measured. The life of about 3000 hours has been attained by initial brightness 200 cd/m^2 (refer to drawing 2).

[0023] On the other hand, when same actuation was carried out in the formed element (with no protection layer 20) to the metal cathode 18, the reduction-by-half life was about 500 hours. This result is shown in drawing 2 . Moreover, when continuation actuation of the actuation current was carried out by 500 mA/cm^2 , as shown in drawing 3 , luminescence stable 30 minutes or more has been attained. On the other hand, a chip temperature rises rapidly and brightness has become 0 in about 10 minutes at the thing without the protection layer 20.

[0024] The triphenyl diamine which is the organic substance which constitutes the electron hole transporting bed 14 from the same composition as the "example 2" example 1 as an insulating layer 20a was adopted. In addition, as a metal layer 20b, aluminum is used like the above. Continuation actuation of this element was carried out by actuation current 10 mA/cm^2 , and the reduction-by-half life of brightness was measured. The life of about 2500 hours has been attained by initial brightness 200 cd/m^2 .

[Translation done.]

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-275680

(43) 公開日 平成10年(1998)10月13日

(51) Int.Cl.⁸

H 0 5 B 33/04

識別記号

F I

H 0 5 B 33/04

審査請求 未請求 請求項の数 1 () L (全 4 頁)

(21) 出願番号 特願平9-79597

(22) 出願日 平成9年(1997)3月31日

(71) 出願人 000003609

株式会社豊田中央研究所

愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番
地の1

(72) 発明者 時任 静士

愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番
地の1 株式会社豊田中央研究所内

(72) 発明者 野田 浩司

愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番
地の1 株式会社豊田中央研究所内

(72) 発明者 多賀 康訓

愛知県愛知郡長久手町大字長湫字横道41番
地の1 株式会社豊田中央研究所内

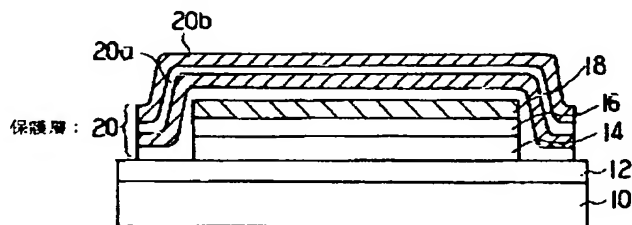
(74) 代理人 弁理士 吉田 研二 (外2名)

(54) 【発明の名称】 有機EL素子

(57) 【要約】

【課題】 素子への酸素水分の拡散を防止すると共に、
放熱性を高める。

【解決手段】 ガラス基板10上に透明電極12、正孔
輸送層14、発光層16、金属陰極18を形成し、正孔
輸送層14、発光層16、金属陰極18を覆って保護層
20を形成する。保護層20は、絶縁層20aと金属層
20bの多層構造となっている。特に、金属層20を保
護層中に有しているため、湿気の素子への進入を防止
し、かつ放熱をよくすることができる。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 一対の電極間に有機材料からなる発光層を挟持し、両電極からキャリアを発光層に注入することによって発光層を発光させる有機EL素子において、少なくとも一方の電極及び発光層の外側を覆う保護層あって、有機層と金属層の2層または無機層と金属層の2層を含む多層構造からなる保護層を有することを特徴とする有機EL素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、一対の電極間に有機材料からなる発光層を挟持し、両電極からキャリアを発光層に注入することによって発光層を発光させる有機EL素子、特にその保護層の構造に関する。

【0002】

【従来の技術】有機EL素子を利用した平面ディスプレイは、次世代のディスプレイとして大きな注目を浴びており、これについての研究開発が盛んに行われている。特に、有機EL素子を利用すれば、直流低電圧駆動、高視野角、自発光などの特徴を有する高解像度ディスプレイが実現可能であり、その利用価値は非常に高いと考えられている。

【0003】この有機EL素子は、例えばガラス基板上に、透明電極（陽極）／正孔輸送層／発光層／金属電極（陰極）を積層形成した構成を有している。また、陽極には仕事関数の大きな物質が用いられ、陰極には仕事関数の小さな物質が用いられる。そして、正孔輸送層及び発光層に有機材料が用いられ、両電極から注入される正孔と、電子が発光層において、再結合することによって発光する。

【0004】ここで、正孔輸送層や発光層に利用する固体有機材料は、水分や、酸素などに侵されやすく、大気中で有機EL素子を駆動するとその発光特性が急激に劣化する。さらに、固体有機材料上に設けられる電極が酸化されないようにする必要もある。従って、有機EL素子では、有機や無機の保護層を設け、素子を封止して大気から隔離する必要がある。例えば、特開平7-192867号公報には、各種の封止方法についての開示がある。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】このように、保護層を設けることによって、有機EL素子の寿命を延ばすことができるが、十分な酸化防止や水分の侵入防止を図ると、放熱性が悪くなってしまうという問題があった。すなわち、保護層の厚みをあまり厚くすると、素子において発生した熱が十分放熱されなくなり、素子の特性が劣化してしまうという問題があった。

【0006】特に、通常の場合、EL素子に要求される輝度は 200 cd/m^2 程度であり、このための駆動電流は数 mA/cm^2 以下であり、発熱の影響はあまり大

きくない。しかし、有機EL素子では、 10 V の印加で 1000 cd/m^2 を超える輝度が得られ、最近の研究では、発光層へのドーピングによって、輝度はさらに改善され、 10万 cd/m^2 の輝度が得られるとの報告もある。例えば、有機EL素子を平面光源として利用することを考えると、数 1000 cd/m^2 の発光が必要であり、それに必要な電流は 100 mA/cm^2 以上になる。この場合には、素子温度は、 100°C を超えることになり、輝度の低下や非発光点が発生し、素子の劣化が起こってしまう。従って、このような高輝度の有機EL素子では、発熱量が大きく、この対策が重要である。なお、熱による素子の劣化は、発光層などの有機層の構造変化や電極酸化の熱による加速が原因である。

【0007】本発明は、上記課題を解決するためのなされたものであり、十分な封止が行えると共に、放熱特性のよい有機EL素子を提供することを目的とする。

【0008】

【課題を解決するための手段】本発明は、一対の電極間に有機材料からなる発光層を挟持し、両電極からキャリアを発光層に注入することによって発光層を発光させる有機EL素子において、少なくとも一方の電極及び発光層の外側を覆う保護層であって、有機層と金属層の2層または無機層と金属層の2層を含む多層構造からなる保護層を有することを特徴とする。

【0009】このように、本発明では、電極及び発光層を保護層で覆った。これによって、一方の電極（例えば金属陰極）及び発光層の周囲雰囲気への水分や酸素の拡散を防止することができ、素子の特性劣化を抑制して長寿命化を図ることができる。特に、保護層が金属層を含んでいる。金属層は、非常に緻密な構造を有しており、酸素や水分の拡散を効果的に防止する。さらに、金属層としてアルミなど不動態の酸化皮膜を形成するものを利用することで、酸素の拡散についても効果的に防止できる。

【0010】また、金属層は、熱伝導性が良好であるため、素子において発生した熱を効果的に放散し、素子の加熱を防止することができる。特に、電流量を大きくして、発光量を大きくした場合には、素子の発熱量が大きく、その放熱性に優れていることが重要な要件になる。本発明によれば、このような大発光量の素子においても、特性の劣化を最小限にできる。

【0011】また、電極上に絶縁層を配置すれば、金属層と陰極とを電気的に絶縁することができる。さらに、最外側に金属層を配置することにより、放熱効果を十分大きなものにすることができる。

【0012】

【発明の実施の形態】以下、本発明の実施の形態（以下実施形態という）について、図面に基づいて説明する。

【0013】図1は、本実施形態に係る有機EL素子の構成を示す図である。ガラス基板10の上面には、透明

電極12が形成されている。この透明電極12は、ITO（インジウム・タン・オキサイド）、 SnO_2 などが利用される。この透明電極12の上に有機材料からなる正孔輸送層14、発光層16が積層形成される。正孔輸送層14はTPD（トリフェニルジアミン）、発光層16はAlq（キノリノールアルミ錯体）等により形成される。発光層16の上には、金属陰極18が形成される。この金属陰極18には、MgAg（9：1）、AlLi（9.9：0.1）、MgIn（9：1）等が採用される。

【0014】そして、この正孔輸送層14、発光層16、金属陰極18の側面を含む全体を覆うように、保護層20を形成する。この保護層20は、絶縁層20aと金属層20bの多層層であり、これらが2層ずつ交互に積層されている。ここで、絶縁層20aには正孔輸送層14や発光層16に用いたものと同じ有機物や、その他低分子、高分子の各種の有機物が利用できる。さらに、この絶縁層20aとして、有機層に代えて、無機層を採用することも好適である。例えば、 MgF_2 などの金属酸化物や半導体化合物の無機層を利用することができる。また、金属層20bにはアルミを用いることができるが、Cr等各種の金属も利用可能である。

【0015】このような有機EL素子において、透明電極12と、金属陰極18とに電圧を印加することで、両電極12、18より、正孔、電子が注入され、これが発光層16において再結合し発光する。本実施形態では、保護層20によって、正孔輸送層14、発光層16、金属陰極18からなる素子部が覆われているため、大気からの酸素、水分の内部への拡散が有効に防止され、素子特性への悪影響を排除することができる。

【0016】特に、本実施形態の素子においては、保護層20が金属層20bを含んでいる。金属層20bは、非常に緻密な構造を有しており、酸素や水分の拡散を効果的に防止する。特に、金属層20bとしてアルミなど不動態の酸化皮膜を形成するものを利用することで、酸素の拡散についても効果的に防止できる。

【0017】また、金属層20は、熱伝導性が良好であるため、素子部において発生した熱を効果的に放散し、素子部の加熱を防止することができる。特に、電流量を $100\text{mA}/\text{cm}^2 \sim 1\text{A}/\text{cm}^2$ 程度と大きくして、発光量を $1000 \sim 10000\text{cd}/\text{m}^2$ と大きくした場合には、素子部の発熱量が大きく、その放熱が重要な課題になる。本実施形態の素子によれば、このような大発光量の素子においても、特性の劣化を最小限にできる。

【0018】また、本実施形態では、金属陰極18上に絶縁層20aを配置したため、これによって、金属層20bと金属陰極18とを電気的に絶縁することができる。さらに、最外側に金属層20bを配置したため、放熱効果を十分大きなものにできる。

【0019】なお、正孔輸送層14、発光層16は50

nm程度、金属陰極18は、200nm程度、保護層20の絶縁層20a、金属層20bは200nm程度の厚さが好ましい。特に、金属陰極18を200nm以上という比較的厚いものにすることによって、放熱を非常に効果的なものにできる。

【0020】また、上述の実施形態では、正孔輸送層14と、発光層16を積層形成したが、混合有機層の1層構成としてもよい。さらに、正孔輸送層14ではなく、電子輸送層を金属陰極18側に設ける構成としてもよい。さらに、透明電極12を陰極とし、対向電極を陽極とすることも可能である。このように、素子部の構成には、現在知られている各種の構成を採用することができる。

【0021】

【実施例】

「実施例1」ITOの透明電極12が予め形成されているガラス基板10上に、真空蒸着により、トリフェニルジアミンを50nm堆積して正孔輸送層14を形成し、その後キノリノールアルミ錯体を50nm堆積して発光層16を形成した。そして、この発光層16上にMgAgを200nm蒸着形成して金属陰極18を形成し、素子を形成した。その後、この素子部の上に、 MgF_2 と、Alを交互に積層し、絶縁層20a、金属層20bからなる保護層20を形成した。この例では、絶縁層20a、金属層20bの厚み両方とも200nmとし、これらを3層ずつ形成した。

【0022】この素子を駆動電流 $10\text{mA}/\text{cm}^2$ で連続駆動して輝度の半減寿命を測定した。初期輝度 $200\text{cd}/\text{m}^2$ で約3000時間の寿命が達成できた（図2参照）。

【0023】一方、金属陰極18まで形成した素子（保護層20なし）において、同様の駆動をしたところ、半減寿命は、約500時間であった。この結果を図2に示す。また、駆動電流を $500\text{mA}/\text{cm}^2$ で連続駆動したところ、図3に示すように、30分以上安定な発光が達成できた。一方、保護層20がないものでは、素子温度が急激に上昇し、約10分で輝度が0となってしまった。

【0024】「実施例2」実施例1と同様の構成で、絶縁層20aとして正孔輸送層14を構成する有機物であるトリフェニルジアミンを採用した。なお、金属層20bとしては、上記と同様にAlを用いている。この素子を駆動電流 $10\text{mA}/\text{cm}^2$ で連続駆動して輝度の半減寿命を測定した。初期輝度 $200\text{cd}/\text{m}^2$ で約2500時間の寿命が達成できた。

【図面の簡単な説明】

【図1】 有機EL素子の実施形態の構成を示す図である。

【図2】 同実施例の寿命を示す特性図である。

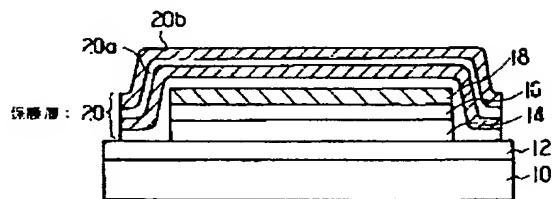
【図3】 同実施例の寿命を示す特性図である。

【符号の説明】

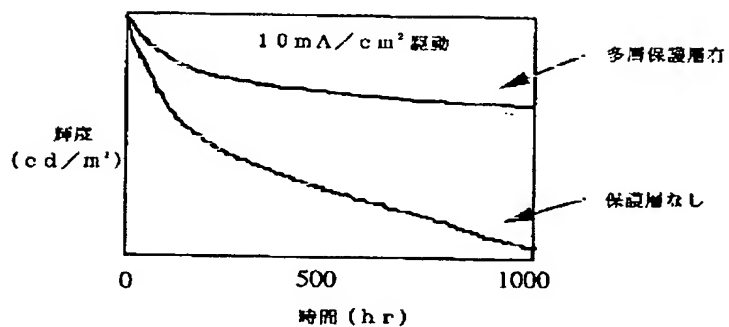
10 ガラス基板、12 透明電極、14 正孔輸送

層、16 発光層、18 金属陰極、20 保護層、20a 絶縁層、20b 金属層。

【図1】



【図2】



【図3】

